

I hereby certify that this correspondence is being deposited with the U.S. Postal Service as Express Mail, Airbill No. EV 377 651 200 US, in an envelope addressed to: MS Patent Application, Commissioner for Patents, P.O. Box 1450, Alexandria, VA 22313-1450, on the date shown below.

Dated: March 12, 2004

Signature:

(Anthony A. Laurentano)

Docket No.: TOW-067

(PATENT)

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

In re Patent Application of:
Kazuhito Matsuda *et al.*

Application No.: NEW APPLICATION

Confirmation No.:

Filed: Concurrently Herewith

Art Unit: N/A

For: FUEL GAS PRODUCTION APPARATUS AND
FUEL CELL SYSTEM

Examiner: Not Yet Assigned

CLAIM FOR PRIORITY AND SUBMISSION OF DOCUMENT

MS Patent Application
Commissioner for Patents
P.O. Box 1450
Alexandria, VA 22313-1450

Dear Sir:

Applicants hereby claim priority under 35 U.S.C. 119 based on the following prior foreign application filed in the following foreign country on the date indicated:

Country	Application No.	Date
Japan	2003-067703	March 13, 2003

In support of this claim, a certified copy of the said original foreign application is filed herewith.

Applicants believe no fee is due with this response. However, if a fee is due, please charge our Deposit Account No. 12-0080, under Order No. TOW-067 from which the undersigned is authorized to draw.

Dated: March 12, 2004

Respectfully submitted,

By 
Anthony A. Laurentano
Registration No.: 38,220
LAHIVE & COCKFIELD, LLP
28 State Street
Boston, Massachusetts 02109
(617) 227-7400
(617) 742-4214 (Fax)
Attorney/Agent For Applicant

TOW-067

日本国特許庁
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日 2003年 3月13日
Date of Application:

出願番号 特願2003-067703
Application Number:

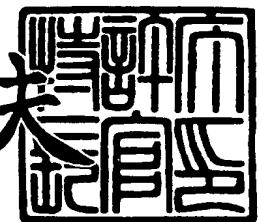
[ST. 10/C] : [JP 2003-067703]

出願人 本田技研工業株式会社
Applicant(s):

2004年 2月24日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

今井康夫



【書類名】 特許願

【整理番号】 PCB17426HT

【提出日】 平成15年 3月13日

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 C01B 3/34

H01M 8/06

【発明者】

【住所又は居所】 埼玉県和光市中央1丁目4番1号 株式会社本田技術研究所内

【氏名】 松田 和人

【発明者】

【住所又は居所】 埼玉県和光市中央1丁目4番1号 株式会社本田技術研究所内

【氏名】 花井 聰

【発明者】

【住所又は居所】 埼玉県和光市中央1丁目4番1号 株式会社本田技術研究所内

【氏名】 高山 雅子

【特許出願人】

【識別番号】 000005326

【氏名又は名称】 本田技研工業株式会社

【代理人】

【識別番号】 100077665

【弁理士】

【氏名又は名称】 千葉 剛宏

【選任した代理人】

【識別番号】 100116676

【弁理士】

【氏名又は名称】 宮寺 利幸

【選任した代理人】

【識別番号】 100077805

【弁理士】

【氏名又は名称】 佐藤 辰彦

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 001834

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9711295

【包括委任状番号】 0206309

【プルーフの要否】 要

【書類名】明細書

【発明の名称】

燃料ガス発生装置

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

炭化水素を含む改質用燃料を改質することにより、水素リッチな燃料ガスを生成する燃料ガス発生装置であって、

前記改質用燃料を改質して改質ガスを生成する改質機構と、

前記改質機構に冷却機構を介して直接連結され、前記改質ガスから不要物を除去して前記燃料ガスを生成する P S A 機構と、

を備え、

前記改質機構は、前記改質用燃料、水蒸気および酸素を供給して酸化反応と改質反応とを同時に行わせることを特徴とする燃料ガス発生装置。

【請求項 2】

請求項 1 記載の燃料ガス発生装置において、前記炭化水素は、メタンであることを特徴とする燃料ガス発生装置。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、炭化水素を含む改質用燃料を改質することにより、水素リッチな燃料ガスを生成する燃料ガス発生装置に関する。

【0002】

【従来の技術】

例えば、固体高分子型燃料電池は、高分子イオン交換膜（陽イオン交換膜）からなる固体高分子電解質膜の両側に、それぞれアノード側電極およびカソード側電極を対設した電解質膜・電極構造体を備え、この電解質膜・電極構造体をセパレータによって挟持することにより単位セルとして構成している。通常、複数の単位セルを積層した燃料電池スタックが、例えば、車載用等の種々の用途に採用されている。

【0003】

この単位セルにおいて、アノード側電極に供給された燃料ガス、例えば、主に水素を含有するガス（以下、水素含有ガスともいう）は、電極触媒上で水素がイオン化され、電解質膜を介してカソード側電極側へと移動する。その間に生じた電子は外部回路に取り出され、直流の電気エネルギーとして利用される。

【0004】

そこで、従来より、天然ガス等の炭化水素燃料から水素含有ガスを生成し、この水素含有ガスを燃料電池スタックに供給する方式が行われている。例えば、図3に示すように、特許文献1に開示されている水素の製造システム1は、脱硫装置2、高温改質装置3、高温変成装置4およびPSA（Pressure Swing Adsorption）装置5を備えている。

【0005】

脱硫装置2は、コバルトモリブデン系水添触媒、酸化亜鉛等の吸着触媒を用いて原料の石油系炭化水素の硫黄分を略完全に除去する機能を有している。高温改質装置3は、ニッケル系触媒を充填した外熱式の反応管内で、加熱した水蒸気とともに高温水蒸気改質反応を行わせて、水素濃度の高い改質ガスを生成する機能を有している。

【0006】

高温変成装置4は、改質ガス中の一酸化炭素を水素に転換させるため、酸化鉄等からなる高温変成触媒上においてCO変成反応を行わせ、水素リッチな混合ガスを得る機能を有している。さらに、PSA装置5は、水素リッチな混合ガス中の二酸化炭素、メタン、一酸化炭素を除去し、水素純度が高い高純度ガスを製造する機能を有している。

【0007】

この場合、PSA装置5は、水素以外の成分を高圧下で選択的に吸着し、減圧下で脱着する吸着剤を充填した複数の吸着塔を設けている。そして、各吸着塔にそれぞれ吸着－脱着－置換－昇圧からなるサイクリック運転を行わせることにより、製品水素を取り出して他の成分をバージガスとして排出するように構成されている。

【0008】

その際、混合ガスの成分の中で一酸化炭素は、吸着し難い成分である。従って、P S A装置5を経済的かつコンパクトに構成するために、このP S A装置5に入る混合ガス中の一酸化炭素の濃度を極力小さく抑えるべく、CO変成反応を行わせる高温変成装置4が、前記P S A装置5の上流側に組み込まれている。

【0009】**【特許文献1】**

特開平8-225302号公報（段落【0002】～【0007】、図1）

【0010】**【発明が解決しようとする課題】**

しかしながら、CO変成反応は、製造システム1内における他の反応、例えば、改質反応と比較して反応速度が遅い。このため、高温変成装置4は、大容量を確保する必要があり、他の装置に比べて大きなものとなってしまい、製造システム1全体が相当に大型化するという問題がある。

【0011】

さらに、CO変成触媒は、他の触媒、例えば、改質触媒と比較して耐久性が低い。従って、製造システム1全体の耐久性は、このCO変成触媒の耐久性（寿命）に影響されてしまい、前記製造システム1が長期間にわたる連続使用に適さないという問題がある。

【0012】

しかも、CO変成触媒は、酸化および還元を繰り返すことにより発熱するため、起動時に加熱媒体として窒素ガスや水蒸気等の不活性なガスが必要であるとともに、停止時に可燃ガスをバージするために前記不活性なガスが必要である。その際、CO変成触媒は、酸化および還元を繰り返すことによって触媒劣化が進展する。これにより、燃焼用空気を直接高温変成装置4内に供給することができず、起動時間および起動エネルギーを低減することが困難となっている。

【0013】

本発明はこの種の問題を解決するものであり、簡単かつコンパクトな構成で、所望の改質反応を迅速に行うとともに、水素リッチな燃料ガスを効率的に生成す

ることが可能な燃料ガス発生装置を提供することを目的とする。

【0014】

【課題を解決するための手段】

本発明の請求項1に係る燃料ガス発生装置では、改質用燃料を改質して改質ガスを生成する改質機構と、前記改質機構に冷却機構を介装して直接連結され、前記改質ガスから不要物を除去して前記燃料ガスを生成するPSA機構とを備えている。そして、改質機構では、改質用燃料、水蒸気および酸素が供給され、いわゆる、オートサーマル方式により、酸化反応と燃料改質反応とが同時に行われる。

【0015】

具体的には、改質用燃料として、例えば、メタン（請求項2記載の発明）が供給されており、 $\text{CH}_4 + 2 \text{O}_2 \rightarrow \text{CO}_2 + 2 \text{H}_2\text{O}$ （発熱反応）と、 $\text{CH}_4 + 2 \text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{CO}_2 + 4 \text{H}_2$ （吸熱反応）とが同時に遂行される。

【0016】

一方、通常の水蒸気改質方式では、 $\text{CH}_4 + 2 \text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{CO}_2 + 4 \text{H}_2$ （吸熱反応）のみが行われるため、外部加熱機構が必要となっている。従って、オートサーマル方式の改質機構では、外部加熱機構が不要になって構成の簡素化が図られるとともに、水蒸気改質方式に比べて暖機時間が短縮され、迅速な始動が確実に行われる。

【0017】

しかも、オートサーマル方式の改質機構では、水蒸気改質方式に比べて一酸化炭素濃度が有効に低減される。このため、改質ガスに対してCO変成反応を行わなくとも、PSA機構を有効に小型化することができる。これにより、高温変成装置が不要になるとともに、簡単かつコンパクトなPSA機構を用いて所望の改質反応を良好に行うことが可能になり、水素リッチな燃料ガスを効率的に生成することができる。

【0018】

さらに、冷却機構では、改質機構から排出される相当に高温の改質ガスが熱交換を行って前記改質ガスを所望の温度に冷却している。従って、熱交換により比

較的大きな熱エネルギー（排熱）が発生し、この熱エネルギーを利用して、例えば、コーディネーションが有効に行われる。

【0019】

【発明の実施の形態】

図1は、本発明の実施形態に係る燃料ガス発生装置10を組み込む燃料電池システム12の概略構成図である。

【0020】

燃料電池システム12は、炭化水素を含む改質用燃料を改質することにより、水素リッチな燃料ガスを生成する本実施形態に係る燃料ガス発生装置10と、この燃料ガス発生装置10から前記燃料ガスが供給されるとともに、エアブロー14を介し酸化剤ガスとして空気が供給され、前記燃料ガス中の水素ガスと前記空気中の酸素とにより発電を行う燃料電池スタック16とを備える。なお、本実施形態では、炭化水素としてメタンが使用される。

【0021】

燃料ガス発生装置10は、改質用燃料を改質して改質ガスを生成するためのオートサーマル方式の改質機構20と、前記改質機構20の出口側に接続されて前記改質ガスを冷却するための冷却機構22と、前記冷却機構22に直接連結され、所望の温度に冷却された前記改質ガスから不要物を除去して水素リッチな燃料ガスを生成するためのP.S.A.機構24とを備える。

【0022】

図2に示すように、改質機構20は、水を蒸発させて水蒸気を発生させる蒸発器26と、前記蒸発器26に蒸発熱を供給する触媒燃焼器28と、前記蒸発器26から排出される水蒸気とともに改質用燃料および空気が供給されて水素ガスを含む改質ガスを生成する改質器30とを備える。

【0023】

P.S.A.機構24は、P.S.A.コンプレッサ32にそれぞれ接続可能な、例えば、3塔式圧力スイング吸着装置を構成しており、吸着塔34、36および38を備える。各吸着塔34～38の出入口の一端には、弁40a～40cが設けられるとともに、前記弁40a～40cを介して前記吸着塔34～38がオフガスタン

ク42に選択的に接続される。このオフガスタンク42は、流量調節弁44を介して触媒燃焼器28に接続される。

【0024】

各吸着塔34～38の出入口の他端には、弁46a～46cが設けられるとともに、前記吸着塔34～38は、弁48を介して燃料電池スタック16内の後述する燃料ガス流路64に連通可能である。

【0025】

燃料電池スタック16は、複数の燃料電池50を積層して構成されており、各燃料電池50は、電解質膜・電極構造体52と、前記電解質膜・電極構造体52を挟持する第1および第2セパレータ54、56とを備える。電解質膜・電極構造体52は、固体高分子電解質膜58と、この固体高分子電解質膜58を挟持するアノード側電極60およびカソード側電極62とを設ける。

【0026】

第1セパレータ54には、アノード側電極60に燃料ガスを供給するための燃料ガス流路64が形成されるとともに、第2セパレータ56には、カソード側電極62に酸化剤ガス、例えば、空気を供給するための酸化剤ガス流路66が形成される。酸化剤ガス流路66の入口には、エアブロー14を介して空気が供給される一方、この酸化剤ガス流路66の出口は、弁68を介して触媒燃焼器28に接続可能である。なお、第1および第2セパレータ54、56間には、冷却媒体を供給するための流路が必要に応じて形成される。

【0027】

このように構成される燃料ガス発生装置10の動作について、燃料電池システム12との関連で以下に説明する。

【0028】

蒸発器26に水が供給されるとともに、この蒸発器26には、触媒燃焼器28で発生した高温の燃焼ガスが供給され、前記水が蒸気化して水蒸気が生成される。この水蒸気は、メタンを含む改質用燃料および空気に混在して改質器30に供給される。

【0029】

この改質器30では、改質用燃料中のメタン、空気中の酸素および水蒸気によって、酸化反応である $\text{CH}_4 + 2\text{O}_2 \rightarrow \text{CO}_2 + 2\text{H}_2\text{O}$ （発熱反応）と、燃料改質反応である $\text{CH}_4 + 2\text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{CO}_2 + 4\text{H}_2$ （吸熱反応）とが同時に行われる。

【0030】

このように、本実施形態では、改質器30内において、発熱反応により燃料改質反応に必要な熱が供給されるため、外部加熱機構が不要になって燃料ガス発生装置10全体の構成が簡素化される。しかも、水蒸気改質方式に比べて暖機時間が短縮され、迅速な始動が確実に行われるという効果が得られる。

【0031】

さらに、本実施形態では、オートサーマル方式の改質機構20を用いることにより、水蒸気改質方式の改質機構に比べて改質器30の出口成分中の一酸化炭素濃度が有効に低減される。

【0032】

具体的には、本実施形態のオートサーマル方式の改質機構20と、水蒸気改質方式の改質機構（図示せず）とを用いて、改質器30の出口成分の割合を検出する実験を行った。その実験の条件としては、改質用燃料の圧力が30kPa、メタンSV（Space Velocity）が8000（SV=流量／触媒体積）（1/h）^r、およびS/C（Steam Carbon比）が3.0（CH₄:H₂O=1:3）に設定された。さらに、反応温度が700°Cに設定された。その結果が表1に示されている。

【0033】

【表1】

表1

出口成分	水蒸気 改質方式(%)	オート サーマル方式(%)
CO	14.0	7.2
CO ₂	13.5	11.0
H ₂	68.4	48.5
CH ₄	4.1	2.9
N ₂	-	30.4

【0034】

この実験結果によれば、オートサーマル方式（本実施形態）では、水蒸気改質方式に比べて出口成分中のCO濃度が約半分に減少した。従って、改質ガスに対してCO変成反応を行わなくても、PSA機構24を有効に小型化することができる事が実証された。

【0035】

これにより、従来の高温変成装置が不要になるとともに、簡単かつコンパクトなPSA機構24を用いて、所望の改質反応を良好かつ迅速に行うことが可能になり、水素リッチな燃料ガスを効率的に生成することができる。

【0036】

特に、高温変成装置を不要にすることによって、燃料ガス発生装置10全体を大幅に小型化かつ簡素化するとともに、コストの削減が確実に図られるという効果がある。しかも、起動時や停止時に窒素ガスや水蒸気等の不活性ガスが不要になり、例えば、起動時には燃焼ガスを改質機構20に直接供給することによって迅速な暖機が可能になる。一方、停止時には空気で加熱性ガスをバージすることができる。このため、始動時間および始動エネルギーの大幅な低減が遂行されるという利点がある。

【0037】

次いで、改質器30で生成された改質ガスは、冷却機構22を介して所望の温度に冷却された後、P S A機構24に供給される。その際、改質器30から排出される改質ガスは、略700℃の高温となっており、この改質ガスは冷却機構22によって略40℃まで冷却された後、P S A機構24に供給される。

【0038】

これにより、冷却機構22では、改質ガスの温度差が相當に大きくなつて、熱交換により比較的大きな熱エネルギー（廃熱）が発生する。従つて、この熱エネルギーを利用することにより、例えば、燃料電池システム12内のコーチェネレーションが有効に行われるという利点が得られる。

【0039】

ところで、P S A機構24に改質ガスが供給されると、この改質ガスはP S Aコンプレッサ32を介して吸着塔34、36および38に選択的に供給される。その際、P S A機構24では、例えば、吸着塔34で吸着工程、吸着塔36で減圧工程、および吸着塔38でバージ工程が行われる。このため、吸着塔34内で水素以外の成分が吸着されて、高濃度の水素（水素リッチ）を含む燃料ガスが、燃料電池スタック16を構成する各燃料電池50の燃料ガス流路64に供給される。

【0040】

さらに、吸着塔34で吸着工程、吸着塔36で均圧工程、および吸着塔38で均圧工程を経た後、前記吸着塔34で吸着工程、前記吸着塔36でプローダウン工程、および吸着塔38で昇圧工程が実施される。従つて、吸着塔36でのプローダウン工程によるオフガスは、オフガスタンク42に供給される一方、前記オフガスタンク42内のオフガスは、触媒燃焼器28の燃料として供給される。

【0041】

上記のように、吸着塔34、36および38では、吸着工程、減圧工程、バージ工程、均圧工程およびプローダウン工程が選択的に行われることにより、水素リッチな燃料ガスが、燃料電池スタック16の燃料ガス流路64に供給される。この燃料電池スタック16では、エアブロー14を介して各燃料電池50の酸化剤ガス流路66に空気が供給される。

【0042】

これにより、電解質膜・電極構造体52では、アノード側電極60に供給される燃料ガスと、カソード側電極62に供給される空気とが、電極触媒層内で電気化学反応により消費され、発電が行われる。なお、カソード側電極62に供給されて消費された空気は、必要に応じて触媒燃焼器28に供給される。

【0043】**【発明の効果】**

本発明に係る燃料ガス発生装置では、改質機構において、改質用燃料、水蒸気および酸素が供給され、いわゆる、オートサーマル方式により、酸化反応と燃料改質反応とが同時に行われる。このため、外部加熱機構が不要になって、構成の簡素化が図られるとともに、水蒸気改質方式に比べて暖機時間が短縮され、迅速な始動が確実に行われる。

【0044】

しかも、一酸化炭素濃度が有効に低減されるため、改質ガスに対してCO変成反応を行わなくても、PSA機構を有効に小型化することができる。これにより、高温変成装置が不要になるとともに、簡単かつコンパクトなPSA機構を用いて所望の改質反応を良好に行うことが可能になり、水素リッチな燃料ガスを効率的に生成することができる。

【図面の簡単な説明】**【図1】**

本発明の実施形態に係る燃料ガス発生装置を組み込む燃料電池システムの概略構成図である。

【図2】

前記燃料ガス発生装置の要部構成説明図である。

【図3】

特許文献1の概略系統図である。

【符号の説明】

10…燃料ガス発生装置

12…燃料電池システム

14…エアブロー

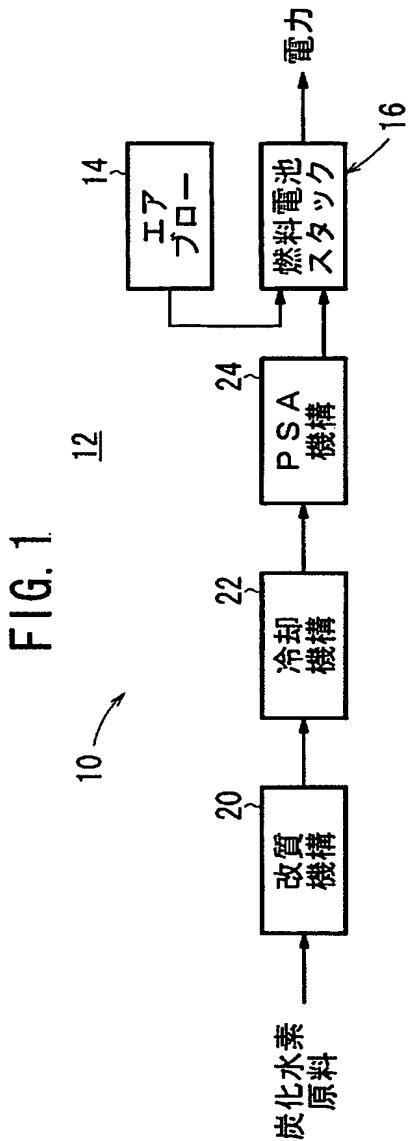
16…燃料電池スタック

20…改質機構	22…冷却機構
24…P S A 機構	26…蒸発器
28…触媒燃焼器	30…改質器
32…P S A コンプレッサ	34～38…吸着塔
50…燃料電池	52…電解質膜・電極構造体
54、56…セパレータ	60…アノード側電極
62…カソード側電極	64…燃料ガス流路
66…酸化剤ガス流路	

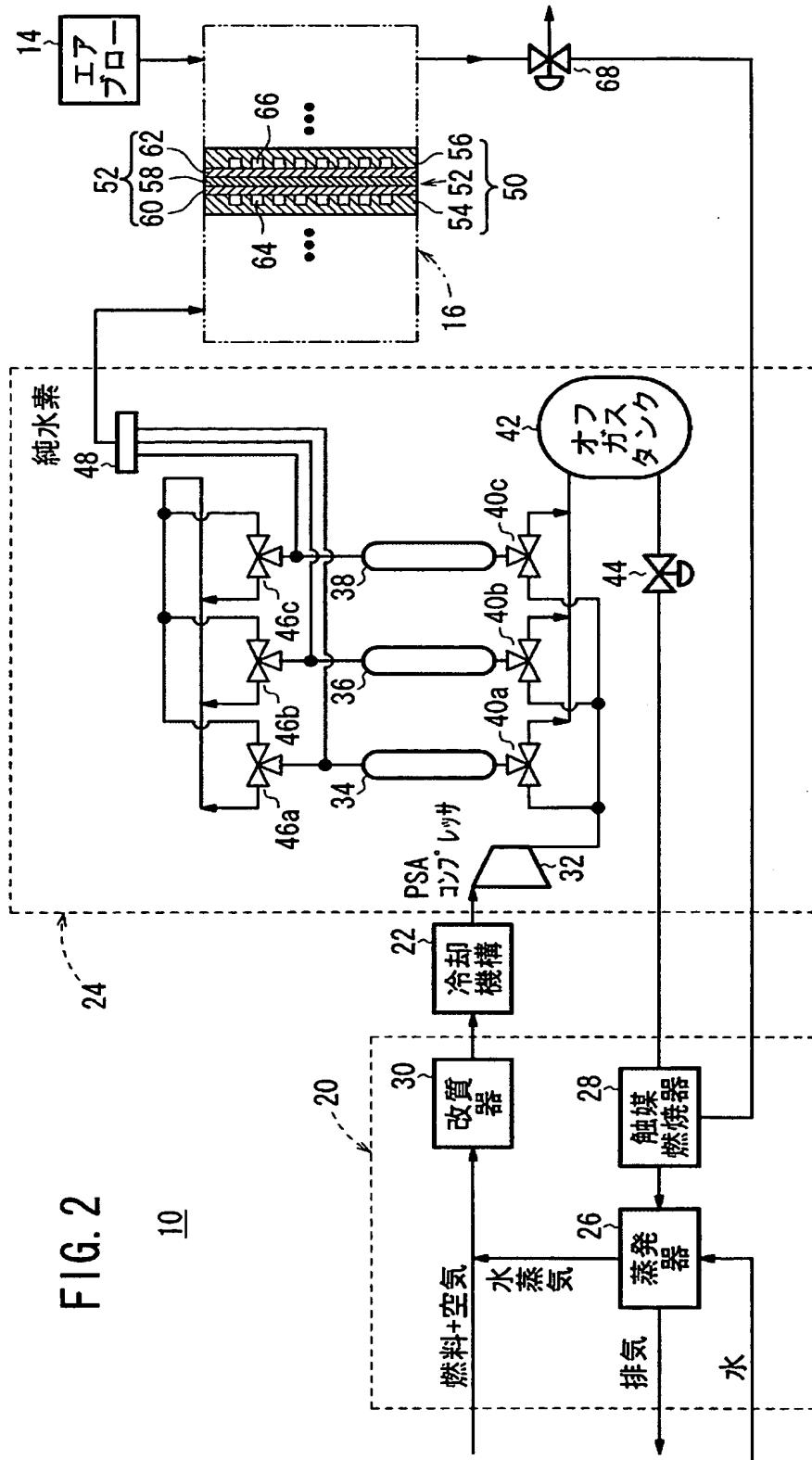
【書類名】

図面

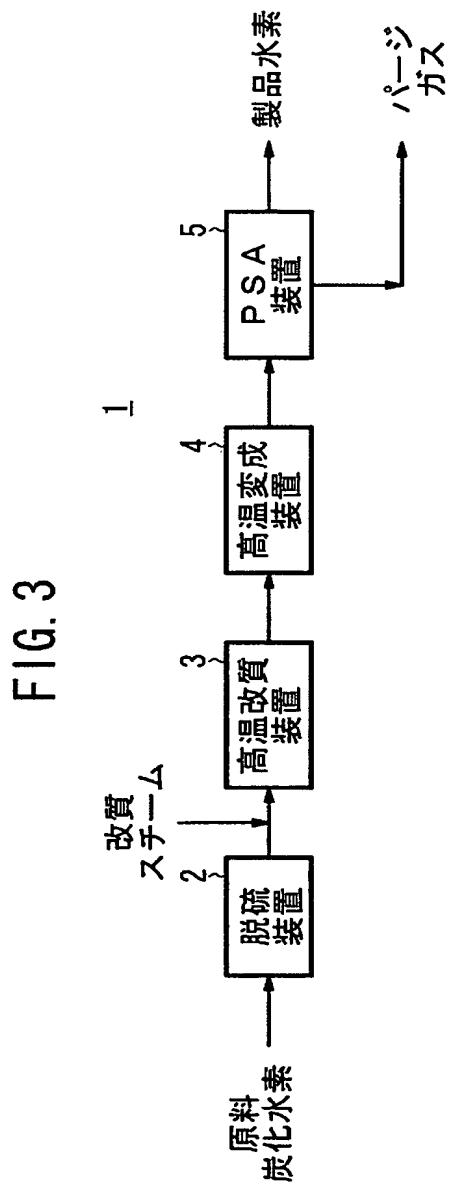
【図 1】



【図2】



【図3】





【書類名】要約書

【要約】

【課題】簡単かつコンパクトな構成で、所望の改質反応を良好に行うとともに、水素リッチな燃料ガスを効率的に生成することを可能にする。

【解決手段】燃料ガス発生装置 10 は、改質用燃料を改質して改質ガスを生成するためのオートサーマル方式の改質機構 20 と、前記改質機構 20 の出口側に接続され、前記改質ガスを冷却するための冷却機構 22 と、前記冷却機構 22 に直接連結され、所望の温度に冷却された前記改質ガスから不要物を除去して水素リッチな燃料ガスを生成するための P S A 機構 24 とを備える。

【選択図】図 1

特願 2003-067703

出願人履歴情報

識別番号 [000005326]

1. 変更年月日 1990年 9月 6日

[変更理由] 新規登録

住所 東京都港区南青山二丁目1番1号
氏名 本田技研工業株式会社